

К ВОПРОСУ ОБ ЭДС ВЫСОКОВОЛЬТНОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ В ИОННЫХ ДИЭЛЕКТРИКАХ

Ю. М. АННЕНКОВ, Г. М. МАЛОФИЕНКО

(Представлена научным семинаром электрофизической лаборатории НИИ
радиационной физики ТПИ)

Перемещение зарядов в твердых диэлектриках под влиянием внешнего электрического поля может частично или полностью задерживаться различными дефектами, приводя к образованию объемного заряда. Падение потенциала, обусловленное обратным полем объемного заряда, А. Ф. Иоффе назвал электродвижущей силой поляризации P [1]. При этом ток, текущий через образец, равен

$$J = \frac{U_0 - P}{r_{\text{ист}}}, \quad (1)$$

где U_0 — напряжение, приложенное к диэлектрику;

P — эдс высоковольтной поляризации;

$r_{\text{ист}}$ — истинное сопротивление образца.

На основании выражения (1) был разработан ряд методов для определения величины P во многих изоляционных материалах [1—9]. Однако надо иметь в виду, что формула (1) применима не во всех случаях. Абсорбционный ток в диэлектрике формируется в результате протекания различных поляризационных процессов, число которых может быть весьма большим. Поэтому высоковольтная поляризация является одним из факторов, определяющих вид функции абсорбционного тока, но далеко не во всех случаях этот фактор может быть преобладающим. В силу этого правомочность применения того или иного метода для определения P должна быть достаточно обоснована.

В настоящей статье обсуждаются условия возникновения эдс высоковольтной поляризации применительно к ионным диэлектрикам и возможности методов измерения P .

Условия возникновения эдс P

Формирование объемного заряда происходит в основном при следующих условиях [1, 2, 10, 11].

1. Явно выраженная неоднородность, например, двухслойный диэлектрик. Заряд накапливается на границе раздела.

2. В результате электролиза или формовки могут образовываться приэлектродные слои, проводимость которых отлична от проводимости внутренней части кристалла. Объемный заряд накапливается в этих слоях.

3. Блокирующие свойства контакта «металл-диэлектрик» вызывают накопление ионов у электродов.

4. Наличие центров захвата в кристаллической решетке приводит к образованию объемного заряда по всей толщине диэлектрика.

Во всех четырех случаях накопление объемного заряда будет сопровождаться абсорбционным током. Однако в первых двух накопление

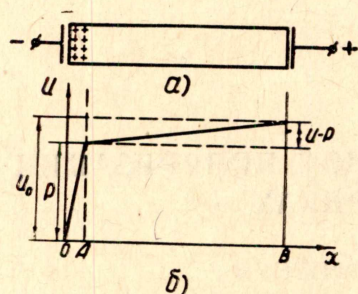


Рис. 1. Распределение потенциала (б) по толщине диэлектрика (а) после приложения постоянного напряжения

объемного заряда может привести к возникновению эдс P и перераспределению потенциала по толщине диэлектрика, как показано на рис. 1. В третьем (иногда и во втором) случае накопление зарядов может происходить в очень тонких приэлектродных слоях и проявиться в виде двойного электрического слоя [12]. На поверхности диэлектрика и электрода (в плоскости их контакта) образуются равные по величине и противоположные по знаку заряды. Из условия электрической нейтральности полного двойного электрического слоя следует ожидать, что перераспределения

потенциала по толщине образца и образования эдс P в этом случае не произойдет.

При равномерном распределении объемного заряда в диэлектрике перераспределение потенциала возможно только при условии, если носители заряда инжектированы из электрода. В этом случае плотность объемного заряда нетрудно связать с потенциалом уравнением Пуассона [2]

$$\frac{\partial^2 \rho}{\partial x^2} = -\frac{4\pi}{\epsilon} \rho, \quad (2)$$

где x — расстояние от одного из электродов,
 ϵ — диэлектрическая проницаемость диэлектрика.

Если плотность объемного заряда $\rho = \text{const}$ во всем объеме диэлектрика, то из (2) имеем

$$\varphi = \frac{1}{2} C x^2 + C_1 x, \quad (3)$$

где C и C_1 — постоянные интегрирования.

При $x = 0$, $\varphi = 0$, при $x = d$ (толщина образца), $\varphi = \frac{1}{2} C \cdot d^2 + C_1 d = \varphi_{\text{max}}$ эдс P непрерывно изменяется по всей толщине диэлектрика. Теперь уравнение (1) примет вид

$$J = \frac{U_0 - P(x)}{r}. \quad (4)$$

Равномерное смещение собственных слабо закрепленных ионов в диэлектрике не скажется на среднем макроскопическом распределении потенциала. Произойдет процесс, аналогичный объемной диэлектрической поляризации однородного диэлектрика и подчиняющийся уравнению [2]

$$E_{\text{ср}} = \frac{4\pi I}{\epsilon - 1}. \quad (5)$$

Здесь $E_{\text{ср}} = \frac{U_0}{d}$;

I — электрический момент единицы объема диэлектрика;
 d — толщина образца.

Таким образом, из краткого рассмотрения условий формирования объемного заряда видно, что последний не всегда приводит к образованию эдс P .

Абсорбционные токи в диэлектриках

В настоящее время не вызывает сомнения тот факт, что спадание тока со временем в твердых диэлектриках обусловлено не только образованием объемного заряда. Определенный вклад в наблюдаемую величину тока могут вносить такие явления, как зарядка геометрической емкости и различные поляризационные процессы [2, 13—16]. Схематично общую кривую зависимости тока от времени можно, вероятно, представить как сумму токов, обусловленных перечисленными процессами (рис. 2). Например, в щелочногалоидных кристаллах может происходить ориентация под действием электрического поля комплексов типа «двухвалентный ион металла — катионная вакансия». Работами в нашей лаборатории [17] показано, что постоянная времени релаксации таких диполей при комнатной температуре составляет 10^{-2} с. Следовательно, ориентационная поляризация примесных комплексов должна вносить значительный вклад в фиксируемую величину абсорбционного тока (рис. 2) при временах порядка 10^{-2} с с момента включения напряжения. Дивакансии, коагуляты вакансий и др. образования тоже реагируют на воздействие внешнего электрического поля. Миграция одиночных точечных дефектов (катионные и анионные вакансии, межузельные ионы) могут привести к образованию объемного заряда. Однако ввиду малой подвижности вакансий и необходимости их перемещения на большие расстояния этот процесс достаточно длителен по времени.

Из всех перечисленных явлений к возникновению эдс P (в соответствии с ее определением) приводит только образование объемного заряда. Значит, для измерения P необходимо из всей экспериментальной кривой $I(t)$ (кривая 1, рис. 2) выделить участок, обусловленный образованием объемного заряда, для которого справедлива формула (1).

Обычно при экспериментальном определении P стремятся измерять начальный ток I_0 , соответствующий моменту включения напряжения. Однако хорошо известно [2, 14], что в момент включения электрического поля ($t = 0$) I_0 определяется приложенным напряжением и сопротивлением внешней цепи и совершенно не характеризует собой свойства исследуемого материала. Таким образом, желание экспериментатора зафиксировать I_0 или близкий к нему по значению ток без выяснения его природы при измерении эдс P является неоправданным и может привести к ошибочным результатам.

В тех случаях, когда в однородном диэлектрике эдс P не возникает при приложении постоянного напряжения, изменение тока во времени хорошо объясняется изменением комплексной проводимости согласно выражению

$$I(t) = \sigma(t) \cdot U_0. \quad (6)$$

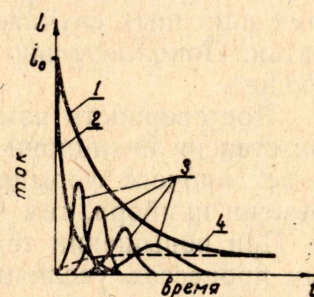


Рис. 2. Схематическое изображение зависимости тока от времени при приложении постоянного напряжения к диэлектрику. 1 — суммарная кривая, 2 — ток заряда геометрической емкости; 3 — токи, обусловленные различными поляризационными процессами; 4 — ток сквозной проводимости

Здесь $\sigma(t)$ — комплексная проводимость диэлектрика, непосредственно связанная с характеристиками и свойствами изоляционного материала и удовлетворительно объясняющая физику рассматриваемого процесса [2, 6, 13—15].

О методах измерения эдс P

Исследования показали [2—9], что при нагревании щелочногалоидных кристаллов P быстро уменьшается и при $T = 200—250^\circ\text{C}$ становится практически равной нулю. Такой ход зависимости $P=f(T)$ авторы объясняют рассасыванием объемного заряда с повышением температуры. Однако измерения непосредственно объемного заряда свидетельствуют [18—20], что он увеличивается с ростом температуры. Например, Косман М. С. и Писаренко В. Ф. [20] наблюдали значительные ($10^{-3}—10^{-4}$ к/см³) объемные заряды в щелочногалоидных кристаллах при $450—600^\circ\text{C}$. Отмеченное противоречие, на наш взгляд, обусловлено недостаточной физической обоснованностью применения методов измерения P в тех или иных случаях, о чем говорилось в предыдущих параграфах статьи. Дополнительно нам хотелось бы обратить внимание на следующее.

Достоверность измеренного начального тока определяется в сильной степени инерционностью измерительного прибора. Чем быстрее протекает процесс формирования объемного заряда и больше постоянная времени прибора, тем большая ошибка вносится в измеряемую величину. При повышении температуры скорость установления поляризационных процессов увеличивается. Например, в каменной соли остаточный ток устанавливается при температуре 70°C за несколько минут, при 100°C за несколько секунд, при 140°C — за тысячные доли секунды [21]. Наступает момент, когда постоянная времени поляризации становится сравнимой и затем меньше постоянной времени прибора, что приводит к ложному представлению об ослаблении исследуемого процесса. На наш взгляд, это первая причина, которая привела к выводу о том, что с ростом температуры эдс P резко уменьшается.

В ионных кристаллах температурная зависимость тока сквозной проводимости подчиняется закону

$$i_{\text{скв}} = i_{\text{скв}}^0 \cdot e^{-\frac{W}{kT}} \quad (7)$$

и не связана с изменением эдс P [10, 14] (W — энергия активации процесса электропереноса). В большинстве методов [2—9] величина P определяется отношением тока сквозной проводимости к начальному току (например, $P = U_0 \left(1 - \frac{i_{\text{скв}}}{J_0}\right)$). Естественно, с ростом температуры величина P будет убывать по причинам, совершенно не связанным с уменьшением объемного заряда. $i_{\text{скв}}$ растет согласно формуле (7), J_0 уменьшается за счет инерционности прибора. Очевидно, это вторая причина, которая привела к выводу об уменьшении P с ростом температуры.

Заключение

Спадание тока со временем при постоянно приложенном напряжении характеризует собой наличие различных поляризационных процессов в диэлектрике и в большинстве случаев не может быть мерой величины эдс P . Наблюдаемое явление, на наш взгляд, лучше описывается выражением (6).

Формула (1) математически описывает изменение тока со временем, но величина P приобретает определенный физический смысл только в конкретном случае, когда уменьшение тока связано с образованием объемного заряда в ограниченной области диэлектрика. Недостаточное внимание к этому условию, положенному А. Ф. Иоффе в основу формулы (1), привело к применению ее во всех случаях спадания тока со временем без достаточного физического обоснования.

Поскольку образование объемного заряда не во всех случаях сопровождается возникновением эдс P , то для изучения законов формирования его следует использовать более корректные методы, к которым можно отнести метод термодеполяризации [22]¹.

ЛИТЕРАТУРА

1. А. Ф. Иоффе. Физика кристаллов. Госиздат, М.—Л., 1929.
2. Г. И. Сканапи. Физика диэлектриков. Область слабых полей. ГИТЛ, М.—Л., 1949.
3. С. И. Горелик, В. Е. Толстой. ЖЭТФ, 21, 67, 1951.
4. М. С. Косман, Н. Н. Созина. ЖЭТФ, 17, 65, 1947.
5. Б. В. Горелик, В. Т. Дмитриев. ЖТФ, 18, в. 3, 1948.
6. Физика диэлектриков. Под редакцией Вальтера А. Ф. ГТТИ. 1932.
7. М. К. Шидловский. ЖТФ, 23, в. 8, 1957.
8. В. А. Принов. ЖТФ, 22, в. 6, 1952.
9. М. С. Косман, Н. А. Петрова. Изв. АН СССР. Серия физическая, 22, в. 3, 1958.
10. А. Лидьярд. Ионная проводимость кристаллов. ИЛ, М., 1962.
11. Macdonald, J. R. J. Chem. Phys., 29, № 6, 1958.
12. С. М. Хзарджян. Вестник Московского университета. Физика и астрономия. № 2, 1966.
13. Н. П. Богородицкий, В. В. Пасынков. Материалы радиоэлектронной техники. «Высшая школа», М., 1969.
14. Н. П. Богородицкий, Ю. М. Волокобинский, А. А. Воробьев, В. М. Тареев. Теория электриков. «Энергия», М.—Л., 1965.
15. А. А. Воробьев. Физические основы ионных кристаллических диэлектриков. Кн. 1. Изд-во Томского университета, 1960.
16. Sutter P., Nowick A. J. Appl. Phys., 34, 734, 1963.
17. Ю. М. Анненков. Кандидатская диссертация. Томск, 1968.
18. Ю. М. Анненков, Г. М. Малофиенко. Изв. вузов. «Физика», № 1, 1970.
19. М. Н. Попова, Г. Б. Семушкин, А. И. Цикин. Изв. АН СССР. Серия физическая, 29, № 1, 1965.
20. М. С. Косман, В. Ф. Писаренко. Физика диэлектриков. Тр. Всесоюзной конференции по физике диэлектриков. Изд. АН СССР, М., 1958.
21. М. С. Косман, С. Л. Рапопорт. ЖЭТФ, 17, в. 5, 1947.
22. Г. М. Малофиенко, Ю. М. Анненков, В. А. Чернышев. Изв. вузов. «Физика», № 12, 1967.

¹) Поскольку поляризация в твердых диэлектриках во много раз превосходит все значения поляризации в жидкостях, поэтому (и только поэтому) ей присвоено название высоковольтной поляризации [6].